

专 利 合 作 条 约

PCT

专利性国际初步报告

(PCT 第II章)

(PCT 36 和细则 70)

REC'D 27 JUN 2005

WIPO


PCT

申请人或代理人的档案号 P2003278E	关于后续行为 参见 PCT/IPEA/416 表	
国际申请号 PCT/CN03/00594	国际申请日(日/月/年) 24.7 月 2003 (24/07/2003)	优先权日(日/月/年) 30.12 月 2002 (30/12/2002)
国际专利分类(IPC)或者国家分类和 IPC 两种分类 IPC⁷ H01L 39/00		
申请人 清华大学 等		

1. 本报告是国际初步审查单位根据条约 35 做出的国际初步审查报告，并依照条约 36 将其传送给申请人。
2. 本报告共计 4 页，包括扉页。
3. ☒ 本报告还有附件，
 - a. ☒ (传送给国际局和申请人)共计 5 页，包含
☒ 修改后的并且作为本报告基础的说明书修改页、权利要求书修改页和/或附图修改页，和/或对
 本国际初步审查单位所做出的更正页(见 PCT 细则 70.16 和行政规程 607)。
☐ 国际初步审查单位认为修改超出原始公开范围的取代页，参见第 I 栏第 4 项和补充栏。
 - b. ☐ (传送给国际局) 共计 (指明电子载体的类型和数量) _____，包含有在与序列表有关的补充栏中
 指明的电子形式的序列表和/或与其相关的表格。(行政规程 802)

4. 本报告包括关于下列各项的内容：

- I ☒ 报告的基础
- II ☐ 优先权
- III ☐ 不做出关于新颖性、创造性和工业实用性的意见
- IV ☐ 缺乏发明的单一性
- V ☒ 按条约 35(2)关于新颖性、创造性或工业实用性的理由；支持这种意见的引证和解释
- VI ☐ 引用的某些文件
- VII ☐ 国际申请中的某些缺陷
- VIII ☐ 对国际申请的某些意见

提交要求书的日期 12.07 月 2004 (12/07/2004)	完成本报告的日期 8.6 月 2005 (08/06/2005)
中华人民共和国国家知识产权局 IPEA/CN 中国北京市海淀区西土城路 6 号(100088) 传真号：(86-10) 62019451	授权官员 王 燕  电话号码 (86-10): 62084869

I. 报告的基础

1. 关于语言, 本报告将基于:

- ☒ 申请提出时使用的语言。
- ☐ 该申请的_____语言译文, 提供该种语言的译文是
- ☐ 为了国际检索而提交的译文所使用的语言(细则 12.3 和 23.1 (b))。
- ☐ 为了国际申请的公布而提交的译文所使用的语言(细则 12.4)。
- ☐ 为了国际初步审查而提交的译文所使用的语言(细则 55.2 和/或 55.3)。

2. 关于国际申请中各个部分, 本报告基于(申请人为答复受理局根据条约 14 所发通知而提交的替换页, 在本报告中视为“原始提交”的文件, 不作为本报告的附件)

- ☐ 原始提交的国际申请。
- ☒ 说明书, 第 1-6、8、10-14 页 原始提交的,
第 7、9 页 30.5 月 2005 (30.05.2005) 初审单位收到的,
第 _____ 页 初审单位收到的。
- ☒ 权利要求, 第 _____ 页, 原始提交的,
第 _____ 页, 按条约 19 条修改的(附有说明),
第 15-17 页 30.5 月 2005 (30.05.2005) 初审单位收到的,
第 _____ 页 初审单位收到的。
- ☒ 附图, 第 1-7 页, 原始提交的。
第 _____ 页*, _____ 初审单位收到的,
第 _____ 页*, _____ 初审单位收到的。
- ☐ 序列表和/或相关表格——参见与序列表有关的补充栏。

3. 修改导致以下内容的删除:

- ☐ 说明书, 第 _____ 页
- ☐ 权利要求, 第 _____ 项
- ☐ 附图, 第 _____ 页, 图 _____
- ☐ 序列表(具体说明) _____
- ☐ 与序列表相关的表格(具体说明) _____

4. ☐ 由于本报告附件的(某些)修改, 如下所列, 被认为超出了原始公开的范围, 如补充栏所示, 因此本报告是按照没有修改的情况做出的(细则 70.2(c))。

- ☐ 说明书, 第 _____ 页
- ☐ 权利要求, 第 _____ 项
- ☐ 附图, 第 _____ 页, 图 _____
- ☐ 序列表(具体说明) _____
- ☐ 与序列表相关的表格(具体说明) _____

*如果第 4 项适用, 一些或全部的文件页可能做出“被取代”标记。

V. 按条约 35 (2) 关于新颖性、创造性或工业实用性的意见：支持这种理由的引证和解释

1. 意见

新颖性(N)	权利要求	1-18	是
	权利要求		否
创造性(IS)	权利要求	2-8、12、16	是
	权利要求	1、9-11、13-15、17-18	否
工业实用性(IA)	权利要求	1-18	是
	权利要求		否

2. 引证和解释 (细则 70.7)

参考下列文献：

D1: US 6,251,835 B1 (2001 年 6 月 26 日)

D2: CN 1171635 A (1998 年 1 月 28 日)

1、独立权利要求 1 所要求保护的技术方案不符合 PCT 第 33 条第 3 款有关创造性的规定。对比文件 1 (US 6,251,835 B) 涉及高温超导体的表面平面化，并公开了以下技术特征：用具有能量大于 7keV 并小于 200keV (权利要求 1 为 5eV-50keV，与 D1 部分重叠) 的气体束离子轰击高温超导体表面，以同时降低表面粗糙度和表面结晶度以及削弱表面高温超导特性 (见对比文件 1 的说明书第 3 栏 44 行至 61 行，权利要求 1、5)。权利要求 1 与对比文件 1 的区别在于入射角在 5-85 度。对比文件 2 公开了一种用于从高温 TI-Ba-Ca-Cu-O 超导薄膜表面去除粗糙物的方法，并具体公开了该方法包括将高温超导膜表面暴露于惰性离子束中，电源为 300-500V、300mA，该离子束的入射角相对于该薄膜表面为 5°—30° (见对比文件 2 的说明书第 5 页第 6 行至第 8 页、权利要求 1)。在对比文件 2 中使用一定电源来轰击离子束必然要使离子束有一定的能量，并使该离子束的入射角为 5°—30°，本领域技术人员在对比文件 1 的基础上结合对比文件 2 得到权利要求 1 的技术方案是显而易见的，权利要求 1 不具备创造性。

2、权利要求 9 所要求保护的技术方案不符合 PCT 第 33 条第 3 款有关创造性的规定。对比文件 2 公开了超导薄膜为 TI-Ba-Ca-Cu-O (见对比文件 2 的说明书第 5 页第 7 行、权利要求 1)。因此，权利要求 9 不具备创造性。

3、权利要求 10 所要求保护的技术方案不符合 PCT 第 33 条第 3 款有关创造性的规定。对比文件 1 公开了气体束离子轰击高温超导体表面，以同时降低表面粗糙度和表面结晶度 (即表面的) 以及削弱表面高温超导特性 (即体的) (见对比文件 1 的权利要求 1)，因此，权利要求 10 不具备创造性。

补充栏

当前面的任何一栏地方不够时使用

续栏：-

4、权利要求 11 所要求保护的技术方案不符合 PCT 第 33 条第 3 款有关创造性的规定。对比文件 1 公开是要降低高温超导体的表面粗糙度和表面结晶度（见对比文件 1 的权利要求 1），即高温超导体是结晶的（包括单晶或多晶），因此，权利要求 11 不具备创造性。

5、权利要求 13 所要求保护的技术方案不符合 PCT 第 33 条第 3 款有关创造性的规定。对比文件 1 公开了 HTS 膜淀积在单晶或多晶衬底上（见对比文件 1 的说明书第 3 栏 5 行至 12 行），因此，权利要求 13 不具备创造性。

6、权利要求 14 所要求保护的技术方案不符合 PCT 第 33 条第 3 款有关创造性的规定。对比文件 1 公开了气体离子束，例如为 Ar、Ne、N₂、O₂、CO₂、SF₆ 等等（见对比文件 1 的说明书第 3 栏 51 行至 54 行），因此，权利要求 14 不具备创造性。

7、权利要求 15 所要求保护的技术方案不符合 PCT 第 33 条第 3 款有关创造性的规定。对比文件 1 公开了轰击后对 HTS 膜进行退火，退火的温度在 450-870℃（见对比文件 1 的说明书第 5 栏 23 行至 38 行、权利要求 1、12-14），因此，权利要求 15 不具备创造性。

8、独立权利要求 17 所要求保护的技术方案不符合 PCT 第 33 条第 3 款有关创造性的规定。对比文件 1（US 6,251,835 B）涉及高温超导体，并公开了以下技术特征：在单晶或多晶衬底上形成 HTS，用具有能量大于 7keV 并小于 200keV 的气体束离子轰击高温超导体表面，以同时降低表面粗糙度和表面结晶度以及削弱表面高温超导特性（见对比文件 1 的说明书第 3 栏 5 行至 12 行、44 行至 61 行，权利要求 1、5）；并且在对比文件 1 的附图 4 中可看出 YBCO 经轰击后表面出现部分倾斜的圆锥体的形貌。对比文件 2 公开了一种高温 TI-Ba-Ca-Cu-O 超导薄膜表面，并具体公开了该方法包括将高温超导膜表面暴露于惰性离子束中，电源为 300-500V、300mA，该离子束的入射角相对于该薄膜表面为 5°—30°（见对比文件 2 的说明书第 5 页第 6 行至第 8 页、权利要求 1）。在对比文件 2 中使用一定电源来轰击离子束必然要使离子束有一定的能量，并使该离子束的入射角为 5°—30°。本领域技术人员在对比文件 1 的基础上结合对比文件 2 得到权利要求 17 的技术方案是显而易见的，权利要求 17 不具备创造性。

9、权利要求 18 所要求保护的技术方案不符合 PCT 第 33 条第 3 款有关创造性的规定。对比文件 1 公开了轰击后对 HTS 膜进行退火，退火的温度在 450-870℃（见对比文件 1 的说明书第 5 栏 23 行至 38 行、权利要求 1、12-14），因此，权利要求 18 不具备创造性。

权 利 要 求

- 1、一种制作高温超导器件的表面改性方法, 其特征在于: 采用载能粒子束轰击预先形成的材料表面, 用于增加材料表面的平整度, 改变被加工材料的组织结构或内部缺陷, 其中该载能粒子束能量在 5-50000eV, 入射角在 5-85 度。
- 2、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法, 其特征在于: 对于 MgO 材料所使用的粒子束的入射角是 35-85 度。
- 3、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法, 其特征在于: 对于 CeO₂ 材料所使用的粒子束的入射角是 45-85 度。
- 4、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法, 其特征在于: 对于冷轧 Ni 基片材料, 所使用的粒子束的入射角在 10-80 度。
- 5、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法, 其特征在于: 对于 YBCO 材料所使用的粒子束的入射角是 5-85 度。
- 6、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法, 其特征在于: 所述的材料是下述各种金属的任何一种: Ni、NiO、Ni 合金、Cu、Cu 合金、Ag、Ag 合金、Fe、Fe 合金、Mg、Mg 合金, 合金材料的纯度优于 99%, 金属合金的合金组份至少是 0.01wt. %。
- 7、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法, 其特征在于: 所述的材料是下述各种半导体材料的任何一种: Si、Ge、GaAs、InP、InAs、InGaAs、CdS、GaN、InGaN、GaSb、InSb。
- 8、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法, 其特征在于: 所述的材料是下述氧化物材料中的任何一种: SrTiO₃、LaAlO₃、Y₂O₃、RuO₂、CeO₂、

MgO、ZrO₂、SiO₂、Al₂O₃、钇稳定氧化锆 (YSZ)。

9、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法，其特征在于：所述的材料是下述超导材料中的任何一种：YBa₂Cu₃O_{7-δ} (0 < δ < 0.5)、REZ₂Cu₃O_{7-δ} (RE 是稀土元素，Z 是碱性稀土元素，0 < δ < 0.5)、Bi-Sr-Ca-Cu-O，TI-Ba-Ca-Cu-O。

5 10、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法，其特征在于：材料的改性是体的、或表面的、或内部的。

11、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法，其特征在于：所述材料的表面是单晶的、非晶的，或者是多晶结构。

12、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法，其特征在于：
10 所述材料表面可以是抛光过的，也可以是未经抛光的。

13、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法，其特征在于：所述的材料是超导器件制作过程中预先形成的基底、或过渡层、或超导层，或者是基底、过渡层和超导层这三者的任意组合。

14、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法，其特征在于：
15 所述的粒子束是等离子体，或离子束，或含有 O₂ 和 Ar、或 N₂ 和 O₂、或 H₂ 和 Ar 的荷电离子的离子束流中的任何一种离子束流。

15、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法，其特征在于：有时，对所述的材料进行粒子束轰击后，要对所得样品进行退火处理，退火温度在 100-1500 度。

20 16、根据权利要求 1 所述的制作高温超导器件的表面改性方法，其特征在于：所述的金属合金的合金组分，在优先情况下，至少为 0.1wt%。

17. 一种高温超导器件，包括一个基底，其特征在于：还包括一个在基底上生成

的高温超导薄膜, 该高温超导薄膜经载能粒子束轰击后呈倾斜的圆锥体形貌特征, 其中该载能粒子束能量在 5-50000eV, 入射角在 5-85 度。

18. 根据权利要求 17 所述的高温超导器件, 其特征在于: 所述的高温超导薄膜经载能粒子束轰击后可进行退火处理, 退火温度在 100-1500 度。

粒子束轰击后形成的内部缺陷，是指为了达到一定的超导性能，如提高磁通钉扎性能，而有意引入的线形位错、点缺陷等。

本发明的特征在于：采用载能粒子束轰击预先形成的材料表面，用于增加材料表面的平整度，改变被加工材料的组织结构（织构或内部缺陷），该载能粒子束能量在 5-50000eV，入射角在 5-85 度。对于 MgO 材料所使用的粒子束的入射角是 35-85 度。对于 CeO₂ 材料所使用的粒子束的入射角是 45-85 度。对于冷轧 Ni 基片材料，所使用的粒子束的入射角在 5-85 度之间。对于 YBCO 材料所使用的粒子束的入射角是 5-85 度之间。所述的材料是下述各种金属的任何一种：Ni、NiO、Ni 合金、Cu、Cu 合金、Ag、Ag 合金、Fe、Fe 合金、Mg、Mg 合金，合金材料的纯度优于 99%，金属合金的合金组份至少是 0.01wt.%。所述的材料是下述各种半导体材料的任何一种：Si、Ge、GaAs、InP、InAs、InGaAs、CdS、GaN、InGaN、GaSb、InSb。所述的材料是下述氧化物材料中的任何一种：SrTiO₃、LaAlO₃、Y₂O₃、RuO₂、CeO₂、MgO、ZrO₂、SiO₂、Al₂O₃、钇稳定氧化锆 (YSZ)。所述的材料是下述超导材料中的任何一种：YBa₂Cu₃O_{7-δ} (0 < δ < 0.5)、REZ₂Cu₃O_{7-δ} (RE 是稀土元素，Z 是碱性稀土元素，0 < δ < 0.5)、Bi-Sr-Ca-Cu-O、TI-Ba-Ca-Cu-O。材料的改性是体的、或表面的、或内部的。所述材料的表面是单晶的、非晶的，或者是多晶结构。所述材料表面可以是抛光过的，也可以是未经抛光的。所述的材料是超导器件制作过程中预先形成的基底、或过渡层、或超导层，或者是基底、过渡层和超导层这三者的任意组合。所述的粒子束是等离子体，或离子束，或含有 O₂ 和 Ar、或 N₂ 和 O₂、或 H₂ 和 Ar 的荷电离子的离子束流中的任何一种离子束流。所述的载能粒子束能量是 5-50000eV。有时，对所述的材料进行粒子束轰击后，要对所得样品进行退火处理，退火温度在 100-1500 度之间。所述

图 9 是图 8 的三个样品的 XRD 图谱;

图 10 是图 8 的三个样品的采用标准四探针法得出的电阻率-温度关系曲线;

图 11 是图 8 的三个样品的卢瑟福背散射/沟道谱分析。

5 具体实施方式

本发明中指出的粒子束轰击以后形成的体材料结构, 是指为了达到预期的超导性能, 而设计实现的结构。实际材料的改性层可以是体的, 也可以是表面的, 或者是内部的。

10 粒子束轰击后形成的内部缺陷, 是指为了达到一定的超导性能, 如提高磁通钉扎性能, 而有意引入的线形位错、点缺陷等。

本发明的特征在于: 采用载能粒子束轰击预先形成的材料表面, 用于增加材料表面的平整度, 改变被加工材料的组织结构(织构或内部缺陷), 该载能粒子束能量在 5-50000eV, 入射角在 5-85 度。对于 MgO 材料所使用的粒子束的入射角是 35-85 度。对于 CeO₂ 材料所使用的粒子束的入射角是 45-85 度。对于
15 冷轧 Ni 基片材料, 所使用的粒子束的入射角在 5-85 度之间。对于 YBCO 材料所使用的粒子束的入射角是 5-85 度之间。所述的材料是下述各种金属的任何一种: Ni、NiO、Ni 合金、Cu、Cu 合金、Ag、Ag 合金、Fe、Fe 合金、Mg、Mg 合金, 合金材料的纯度优于 99%, 金属合金的合金组份至少是 0.01wt.%。所述的材料是下述各种半导体材料的任何一种: Si、Ge、GaAs、InP、InAs、InGaAs、CdS、
20 GaN、InGaN、GaSb、InSb。所述的材料是下述氧化物材料中的任何一种: SrTiO₃、LaAlO₃、Y₂O₃、RuO₂、CeO₂、MgO、ZrO₂、SiO₂、Al₂O₃、钇稳定氧化锆(YSZ)。所述